

日本国特許庁
PATENT OFFICE
JAPANESE GOVERNMENT

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されて
いる事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed
with this Office.

出願年月日
Date of Application: 1999年11月30日

出願番号
Application Number: 平成11年特許願第338882号

出願人
Applicant(s): 株式会社フジキン

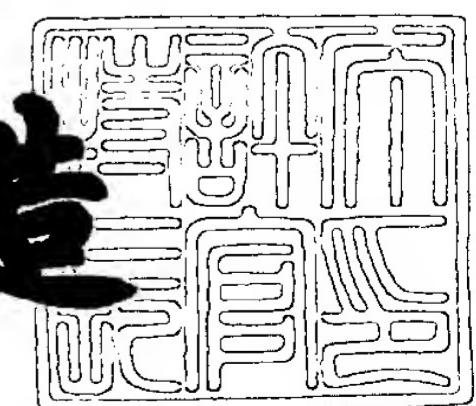


RECEIVED
JUL 13 2001
TC 1700

2000年 8月11日

特許庁長官
Commissioner,
Patent Office

及川耕造



出証番号 出証特2000-3062922

【書類名】 特許願
【整理番号】 T111002PN0
【提出日】 平成11年11月30日
【あて先】 特許庁長官 殿
【発明者】
【住所又は居所】 大阪府大阪市西区立売堀2丁目3番2号 株式会社フジ
キン内
【氏名】 池田 信一
【発明者】
【住所又は居所】 大阪府大阪市西区立売堀2丁目3番2号 株式会社フジ
キン内
【氏名】 皆見 幸男
【発明者】
【住所又は居所】 大阪府大阪市西区立売堀2丁目3番2号 株式会社フジ
キン内
【氏名】 川田 幸司
【発明者】
【住所又は居所】 大阪府大阪市西区立売堀2丁目3番2号 株式会社フジ
キン内
【氏名】 米華 克典
【発明者】
【住所又は居所】 大阪府大阪市西区立売堀2丁目3番2号 株式会社フジ
キン内
【氏名】 本井傳 晃夫
【発明者】
【住所又は居所】 大阪府大阪市西区立売堀2丁目3番2号 株式会社フジ
キン内
【氏名】 平井 輝

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府大阪市西区立売堀2丁目3番2号 株式会社フジ
キン内

【氏名】 森本 明弘

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府大阪市西区立売堀2丁目3番2号 株式会社フジ
キン内

【氏名】 成相 敏朗

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府大阪市西区立売堀2丁目3番2号 株式会社フジ
キン内

【氏名】 平尾 圭司

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府大阪市西区立売堀2丁目3番2号 株式会社フジ
キン内

【氏名】 田口 將暖

【特許出願人】

【識別番号】 390033857

【氏名又は名称】 株式会社フジキン

【代理人】

【識別番号】 100082474

【弁理士】

【氏名又は名称】 杉本 丈夫

【電話番号】 06-6201-5508

【選任した代理人】

【識別番号】 100084342

【弁理士】

【氏名又は名称】 三木 久巳

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 003263

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9721075

【ブルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 減圧型水分発生供給装置

【特許請求の範囲】

【請求項1】 水素と酸素から触媒反応により水分ガスを発生する水分発生用反応炉と、この水分発生用反応炉の下流側に設けられた減圧手段とから構成され、この減圧手段により水分ガスを減圧して下流側に供給すると同時に反応炉内の内圧を高く保持することを特徴とする減圧型水分発生供給装置。

【請求項2】 前記減圧手段をオリフィス、バルブ、キャピラリー、及びフィルターの中の一又は二以上とした請求項1に記載の減圧型水分発生供給装置。

【請求項3】 前記水分発生用反応炉を、原料ガス供給口を有する入口側本体部材と水分ガス取出口を有する出口側炉本体部材とを対向状に組合せて形成した反応炉本体と、この反応炉本体の内部空間内にガス供給口と対向状に配設した入口側反射体と、前記内部空間内に水分ガス取出口と対向状に配設した出口側反射体と、前記出口側炉本体部材の内壁面に形成した白金コーティング触媒層とから成る水分発生用反応炉とした請求項1又は請求項2に記載の減圧型水分発生供給装置。

【請求項4】 前記水分発生用反応炉を、原料ガス供給口を有する入口側本体部材と水分ガス取出口を有する出口側炉本体部材とを対向状に組合せて形成した反応炉本体と、この反応炉本体の内部空間内に配設した反射体と、前記炉本体部材の内壁面に形成した白金コーティング触媒層とから成る水分発生用反応炉とした請求項1又は請求項2に記載の減圧型水分発生供給装置。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】

本発明は、主として半導体製造装置において利用される水分発生供給装置に係り、更に詳細には、水分ガスを減圧状態で下流側に供給し、同時に水分発生用反応炉内の内圧を高めて水素の自然発火を防止できる減圧型水分発生供給装置に関する。

【0002】

【従来の技術】

例えば、半導体製造に於ける水分酸化法によるシリコンの酸化膜形成では、少なくとも1000cc/minを越える超高純度水を必要とする。そのため、本件出願人は先きに図5や図6に示す構造の水分発生用反応炉を開発し、特願平8-242246号(図5)及び特願平10-345500号(図6)として、これを公開している。

【0003】

即ち図5に示した反応炉本体21は、原料ガス供給用継手24を有する入口側炉本体部材22と水分ガス取出用継手25を備えた耐熱性の出口側炉本体部材23を対向状に組み合せて形成されている。この反応炉本体21の内部では、両炉本体部材22、23の原料ガス供給通路24a及び水分ガス出口通路25aと各々対向して入口側反射体29a及び出口側反射体29bが配置されている。反応炉本体21の内部中央にはフィルタ30が設けられ、出口側炉本体部材23の内壁面には白金コーティング触媒層32が形成されている。

【0004】

前記白金コーティング触媒層32は、炉本体部材23の内壁面に形成したTiN等の窒化物からなるバリヤー皮膜32aの上に、蒸着工法やイオンプレーティング工法等によって白金皮膜32bを固着することにより形成される。

【0005】

また、前記図6に示した反応炉本体21に於いては、反応炉本体21の内部に比較的厚い1枚の反射体29が設けられており、且つ出口側炉本体部材23の内周面には、バリヤー皮膜32aと白金皮膜32bとから成る白金コーティング触媒層32が形成されている。

尚、入口側炉本体部材22の外表面と反射体29の外表面にはバリヤー皮膜32aのみが設けられており、白金皮膜32bは形成されていない。入口側炉本体部材22や反射体9の表面が触媒作用を呈することにより、O₂とH₂の反応が起生して局部的な温度上昇が生ずるのを防止するためである。

【0006】

図5を参照して、原料ガス供給通路24aを通して反応炉本体21の内部へ供

給された原料ガスである水素及び酸素は、入口側反射体29a、フィルタ30及び出口側反射体29bから成る拡散用部材によって内部空間26で拡散され、白金コーティング触媒層32と接触する。白金コーティング触媒層32と接触した酸素及び水素は、白金の触媒作用によって反応性が高められ、所謂ラジカル化された状態となる。ラジカル化された水素と酸素は、水素混合ガスの発火温度よりも低い温度で瞬時に反応し、高温燃焼をすることなしに水分を生成する。この水分ガスは水分ガス出口通路25aを介して下流側へ供給される。

【0007】

同様に、図6の反応炉本体21に於いては、原料ガス供給通路24aを通して反応炉本体21の内部へ供給された原料ガスである水素及び酸素は、反射体9と衝突することにより内部空間26で拡散される。また、拡散された原料ガスの水素と酸素は、白金コーティング触媒層32と接触することによりラジカル化された状態となり、前述と同様に高温燃焼をすることなしに瞬時に反応をし、水分を生成する。

【0008】

前記図5や図6等に示した構成の反応炉本体21は、水分発生装置の大幅な小型化が図れ、しかもより高い反応性と応答性の下で1000cc/minを越える量の高純度水や高純度水と酸素との混合ガスを得ることができ、半導体製造技術の分野に於いて画期的な注目を集めているものである。

また、これ等の水分発生用の反応炉本体21は、水素と酸素が炉内において自然発火を起さない温度範囲（例えば400℃）で使用され、触媒反応のみで水分を発生させることにより、安全に高純度の水分を生成供給することを特徴としている。

【0009】

更に、本願発明者等は、上記触媒反応を用いた水分発生に於ける触媒反応効率を高めるために、過去に幾多の開発を行なっており、例えば、特開平10-270437号および特開平10-297907号では、水分ガス中の残留水素を減らすために、反応炉の構造を改善して水素と酸素の反応率を高めている。また、特開平11-171503号では、供給する水素流量を徐々に増加させて水素と

酸素の反応効率を高め、残留水素量を低減させている。更に、特開平11-11902号では、水素の供給開始時点を酸素より遅らせ、同時に水素の供給終了時点を酸素より早めて水素の反応効率を高めている。

その結果、前記図5や図6に示した構成の反応炉本体21は、高い触媒反応効率の下で残留水素量が略零に近い高純度の水分を生成供給できると云う特徴を備えている。

【0010】

【発明が解決しようとする課題】

ところが、半導体製造ラインにおいては、水分を減圧下（例えば数Torr）で供給して処理する工程が多く存在する。この場合、原料ガス供給通路24aから減圧した水素と酸素を反応炉本体21に供給すると、水素の発火温度が低下し、反応炉内で水素が自然発火を生起する可能性がある。

【0011】

図7は、半径7.4cmの球形容器における体積比2:1のH₂-O₂混合気体の発火限界曲線である。この曲線は化学便覧基礎編改定3版（日本化学会編、丸善）II-406から得られ、縦軸は混合気体の全圧、横軸は発火温度を示している。

【0012】

反応炉の内部温度が400℃に設定されているときに、水素と酸素の混合気体の全圧が数Torrにまで減圧されたと考えよう。図7から圧力が数Torrに対応する発火温度は約400℃である。従って、この条件では発火温度が設定温度に接近するため、反応炉内で水素が自然発火してしまう。設定温度を更に高く設定すると、発火は確実に起こる。

【0013】

このように、水素と酸素の混合気体の全圧が低下するに連れて水素の発火温度は急激に低下する。全圧が高いときに水素が発火しないように温度設計されても、全圧が低下すると突然発火する事態が出現する。反応炉内で発火すると、その火炎が原料ガス供給通路24aを介して上流側に逆流し、水素ボンベの爆発の危険性が生じる。

【0014】

本発明は、上述の如き水素と酸素の混合気体の全圧が低下した場合の発火の危険を完全に抑制し、水分ガスの減圧供給を実現すると同時に、水分発生用反応炉の内圧を高く保持して水素の自然発火を完全に防止できるようにした安全な減圧型水分発生供給装置を提供することを、発明の主たる目的とするものである。

【0015】

【課題を解決するための手段】

請求項1の発明は、水素と酸素から触媒反応により水分ガスを発生する水分発生用反応炉と、この水分発生用反応炉の下流側に設けられた減圧手段とから構成され、この減圧手段により水分ガスを減圧して下流側に供給すると同時に反応炉内の内圧を高く保持することを特徴とする減圧型水分発生供給装置である。

【0016】

請求項2の発明は、前記減圧手段がオリフィス又はバルブ、キャピラリー、フィルターである請求項1に記載の減圧型水分発生供給装置である。

【0017】

請求項3の発明は、前記水分発生用反応炉が、原料ガス供給口を有する入口側本体部材と水分ガス取出口を有する出口側炉本体部材とを対向状に組合せて形成した反応炉本体と、この反応炉本体の内部空間内にガス供給口と対向状に配設した入口側反射体と、前記内部空間内に水分ガス取出口と対向状に配設した出口側反射体と、前記出口側炉本体部材の内壁面に形成した白金コーティング触媒層とから形成される請求項1又は請求項2に記載の減圧型水分発生供給装置である。

【0018】

請求項4の発明は、前記水分発生用反応炉を、原料ガス供給口を有する入口側本体部材と水分ガス取出口を有する出口側炉本体部材とを対向状に組合せて形成した反応炉本体と、この反応炉本体の内部空間内に配設した反射体と、前記炉本体部材の内壁面に形成した白金コーティング触媒層とから成る水分発生用反応炉とした請求項1又は請求項2に記載の減圧型水分発生供給装置である。

【0019】

【発明の実施の形態】

前述したように、本発明が達成すべき課題は二つあり、第1は高純度の水分ガスを下流側に低圧で供給でき、第2は水分発生用反応炉の内圧を高く保持して水素の発火温度を高く保持することである。このようにして、水分生成を行う反応炉の実際設定温度と発火温度の差を大きくして発火を防止する。

【0020】

本発明者等は上記課題を解決するために銳意研究した結果、2種の課題を同時に解決する方法を着想するに到った。即ち、水分発生用反応炉の下流位置にオリフィスやバルブ等の減圧手段を配置すれば、水分発生用反応炉では高圧で水分ガスを生成し、この水分ガスを減圧手段で絞って下流側に低圧で供給することが可能となる。

【0021】

例えば、水分発生用反応炉の設定温度を350℃とする。水素と酸素の混合ガスの全圧を100～1000 Torrに調整して水分発生用反応炉に供給すると、図7からその発火温度は540～580℃であることが分る。このようにすれば発火温度と設定温度との差は190～230℃にも達し、水素が自然発火することは有り得ない。この温度差を大きく保持することが水素発火を防止し、水分ガスの安全供給を実現する。

【0022】

以下に、本発明に係る減圧型水分発生供給装置の実施形態を図面に従って詳細に説明する。

図1は減圧型水分発生供給装置の実施形態の構成図である。 H_2 、 O_2 、 N_2 の3種類のガスがバルブV1、V4、V7により選択されながら流入し、マスフローコントローラMFC1、MFC2、MFC3により流量制御されながら、バルブV3、V6、V9を介して水分発生用反応炉WVGに供給される。バルブV2、V5、V8は排気用バルブである。

【0023】

水分発生用反応炉WVGは図5に示されているのでその説明を省略する。反応炉WVGで生成された水分ガスの圧力は圧力計P1で計測されてレコーダRで記録される。この水分ガスは減圧手段RM（図1ではオリフィス）で絞られて減圧

され、水素センサー S1、S2 で残留水素を計測されながら、フィルター F を介してプロセスチャンバー C に送られる。残留水素量もレコーダ R に記録される。

また、記録で示す領域 BA は 140°C で加熱され、管内面でのガス吸着を防止している。

【0024】

フィルター F から送られる水分ガスはサンプリングバルブ SV を介して質量分析器 M で成分分析される。プロセスチャンバー C は例えば半導体製造装置であり、バルブ V10 を介して真空ポンプ RP で引かれ、その内圧は圧力計 P2 で計測される。不用なガスはバルブ 11 で排気される。

【0025】

マスフローコントローラ MFC1～MFC3 に入る原料ガスのガス圧は 2 (kg/cm² G) であるが、流量調節される結果、それらの流量は N₂ で 1 SLM、H₂ で 0.2～1 SLM、O₂ で 0.5～1 SLM である。プロセスチャンバー C の内圧は真空ポンプ RP で 1 Torr に調整される。減圧手段 RM として用いられるオリフィスの直径は 0.6 mm で、水分発生用反応炉 WVG の内部温度は 350°C に設定されている。

【0026】

図 2 は水分発生用反応炉圧力の N₂ ガス流量依存性を示している。真空ポンプ RP を停止し、バルブ 11 を開放して、プロセスチャンバー C を大気圧に設定する。この状態で、N₂ ガスだけで図 1 の装置をバージする。N₂ ガス流量を 100～5000 sccm の範囲で増加したとき、反応炉圧力は約 900～1900 Torr の範囲で直線的に増加することが分かる。

【0027】

減圧手段 RM としてオリフィスが配置されているから、N₂ ガスの流量を増加すると、オリフィスによる下流側への流通規制により、反応炉内に N₂ ガスが滞留するため反応炉圧力が増加する。N₂ ガスで圧力増加が生じるから、当然に他の混合ガスでも圧力増加が期待できる。

【0028】

図 3 は水分発生用反応炉圧力の H₂ - O₂ 混合ガス流量依存性を示している。

図1において真空ポンプRPを作動させてプロセスチャンバーCの圧力を1Torrに設定する。H₂ガス流量を1000sccmに固定し、O₂ガス流量を600～1500sccmにまで増加させる。

【0029】

H₂ガス1000sccmと反応するO₂ガスの化学量論的流量は500sccmであり、生成する水分ガス流量の理論値は1000sccmである。しかし、実際の反応では理論通りゆかず、H₂ガスが少量残留する結果、水分ガスは1000sccmより少なくなる。また、流量増加では、悪作用のないO₂ガス流量を増加させて、H₂-O₂混合ガスの全圧を増加させる。

【0030】

図3から明らかなように、O₂ガス流量を600～1500sccmの範囲で増加させると、反応炉圧力は約400～740Torrの範囲で直線的に増加することが分る。この圧力範囲であれば、反応炉内における水素の発火温度は約560℃であることが図6から分かり、炉内設定温度350℃に対して発火温度は約210℃上回っている。従って、反応炉内では水素の発火は起り得ない。

【0031】

図4は図3におけるO₂ガス流量変化時の未反応H₂ガス濃度を示している。図3のように酸素リッチ条件で反応させても、未反応のH₂ガスは多くても約0.08%の微量であり、しかも本発明の減圧手段により反応炉内は高圧に保持できる。その結果、発火温度の上昇により水素の発火は強力に防止され、安全に水分を生成することができる。

【0032】

図1では減圧手段RMとしてオリフィスが使用されているが、バルブでも構わない。バルブでは開口部が可変できるから、流量調整が可能となり、水分発生用反応炉内の圧力調整が自在となる。また、減圧手段RMとしては絞り機構を有して圧力調整できるものや圧力損失を生じるものなら何でもよく、ノズル、ベンチュリー管、キャピラリー、フィルター等の公知のものでも利用できる。

【0033】

本発明は上記実施例に限定されるものではなく、本発明の技術的思想を逸脱し

ない範囲における種々の変形例、設計変更等をその技術的範囲内に包含するものである。

【0034】

【発明の効果】

請求項1の発明によれば、水分発生用反応炉の下流側に設けられた減圧手段により、水分ガスを減圧して下流側に供給でき、また反応炉の内圧を高く保持できるので水素の発火を確実に防止でき、安全で安定な水分供給を実現できる。

【0035】

請求項2の発明によれば、オリフィスという簡単な減圧手段で減圧と発火防止を実現でき、また減圧手段としてバルブを用いた場合には、開閉動作だけで減圧と発火防止の程度を可変調整できる。

【0036】

請求項3及び請求項4の発明によれば、白金コーティング触媒層により水素と酸素の水分発生反応を高効率に実現できるため、水分ガス中に含まれる未反応水素量を極少化でき、減圧手段と共に安全性を一層高めることができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】

本発明に係る減圧型水分発生供給装置の実施形態の構成図である。

【図2】

水分発生用反応炉圧力の N_2 ガス流量依存性を示すグラフである。

【図3】

水分発生用反応炉圧力の $H_2 - O_2$ 混合ガス流量依存性を示すグラフである。

【図4】

図3における O_2 ガス流量変化時の未反応 H_2 ガス濃度を示すグラフである。

【図5】

水分発生用反応炉の一例を示す断面図である。

【図6】

水分発生用反応炉の他の例を示す断面図である。

【図7】

体積比2:1のH₂-O₂混合気体の発火限界曲線である。

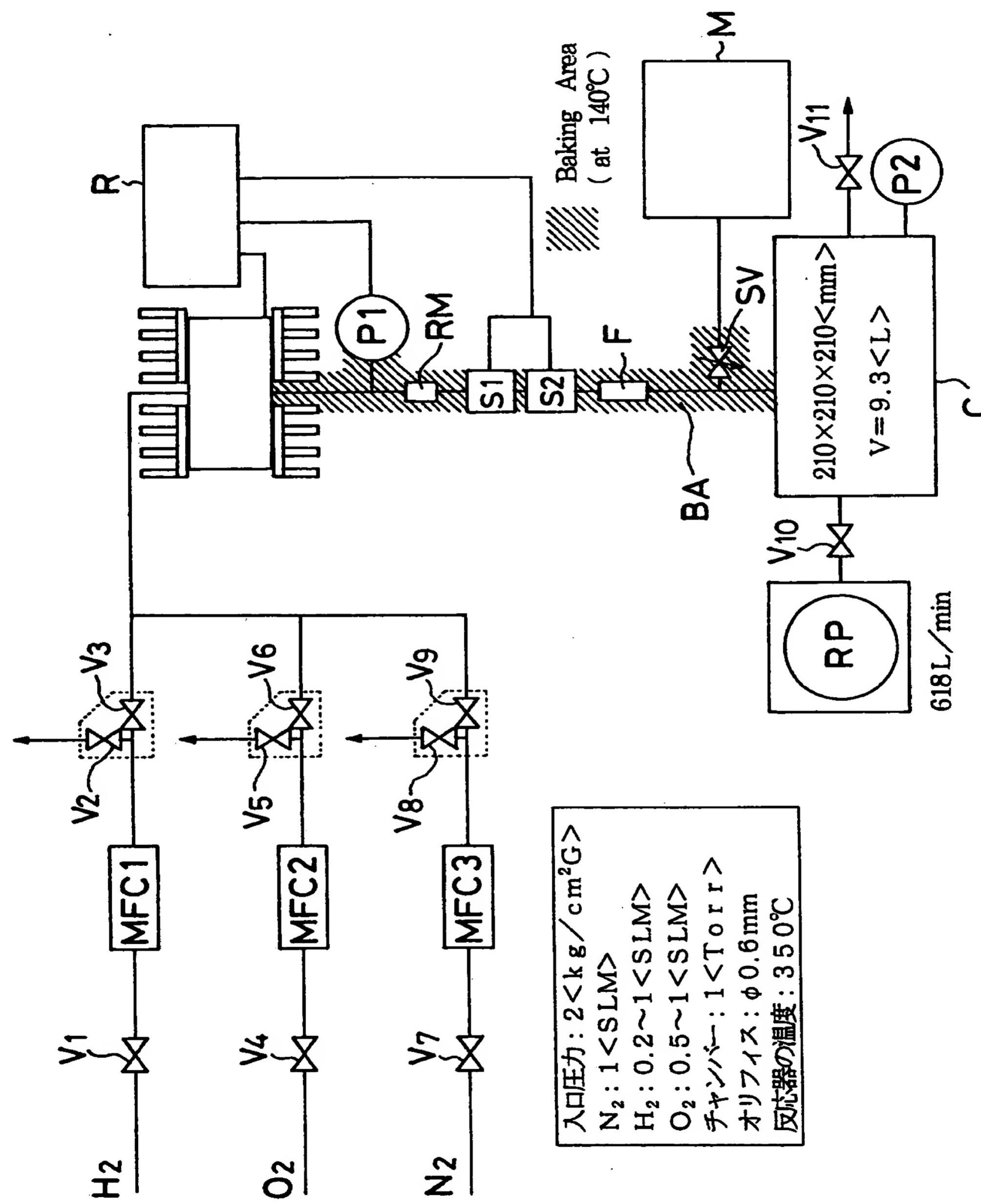
【符号の説明】

21は反応炉本体、22は入口側炉本体部材、23は出口側炉本体部材、24は原料ガス供給用継手、24aは原料ガス供給通路、25は水分ガス取出用継手、25aは水分ガス出口通路、26は内部空間、29aは入口側反射体、29bは出口側反射体、32は白金コーティング触媒層、32aはバリヤー皮膜、32bは白金皮膜、BAは加熱領域、Cはプロセスチャンバー、Fはフィルター、Mは質量分析器、MFC1～MFC3はマスフローコントローラ、P1・P2は圧力検出器、Rはレコーダ、RMは減圧手段、RPは真空ポンプ、S1・S2は水素センサー、SVはサンプリングバルブ、V1～V11はバルブ、WVGは水分発生用反応炉。

【書類名】

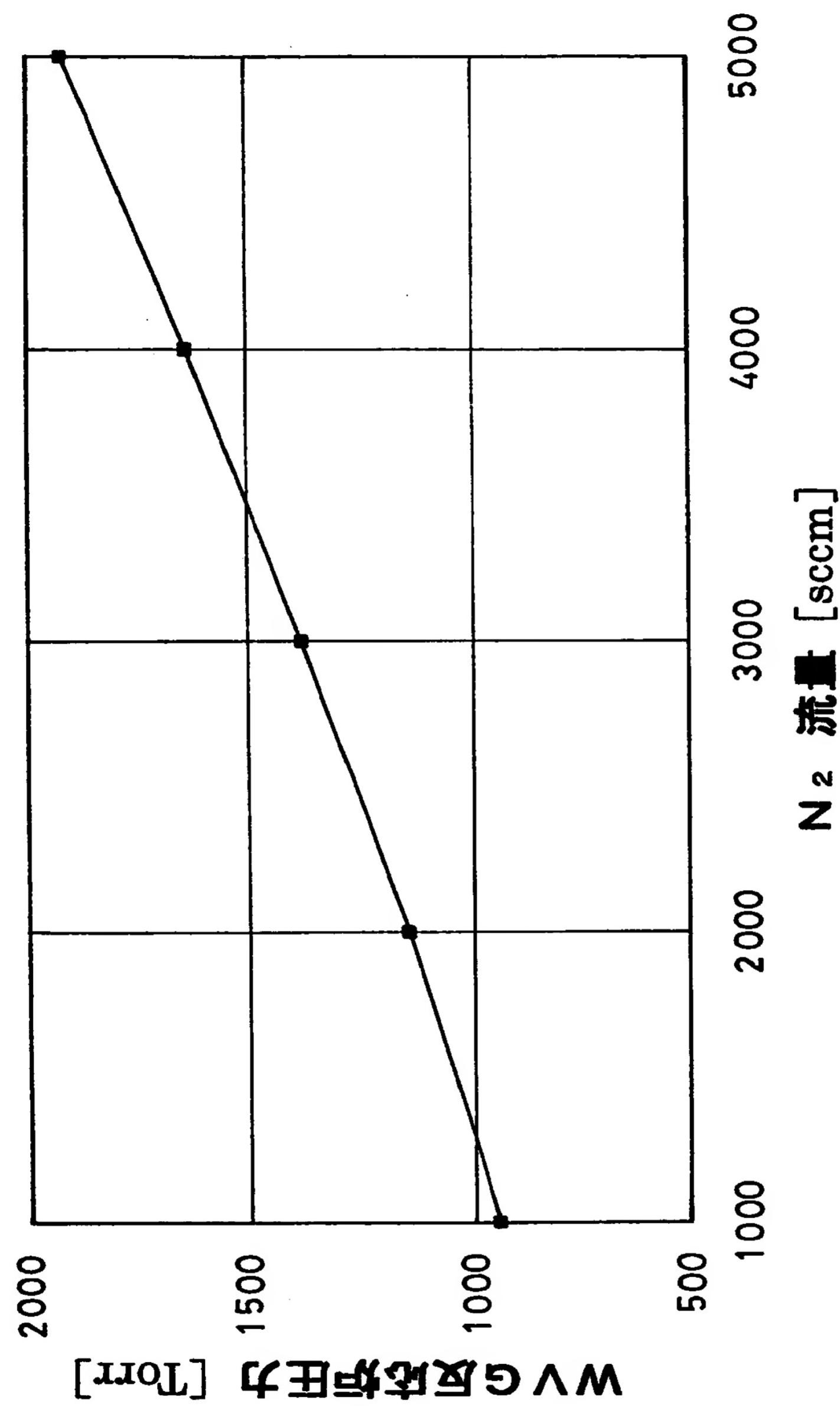
図面

【図1】

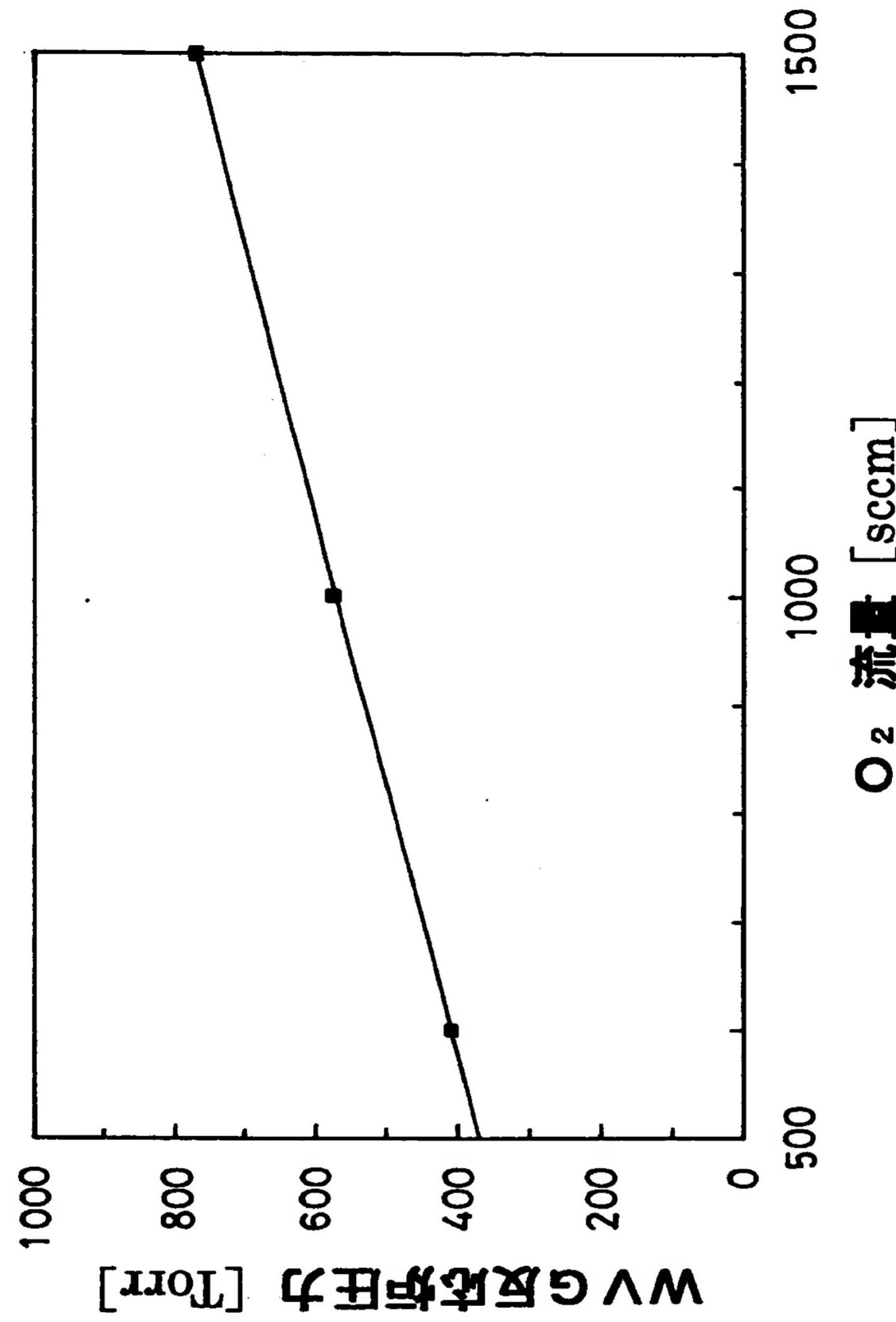


特平 11-338882

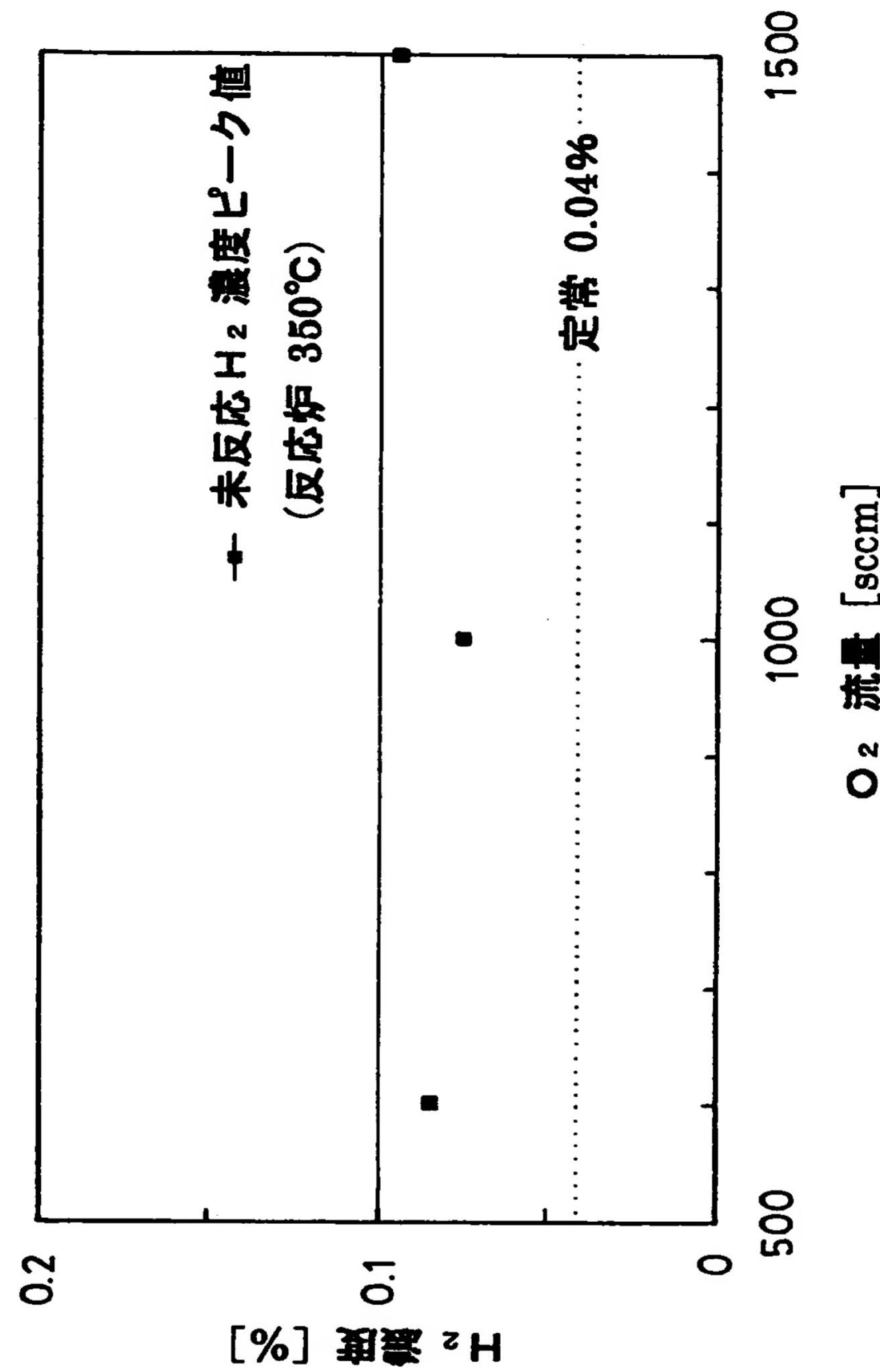
【図2】



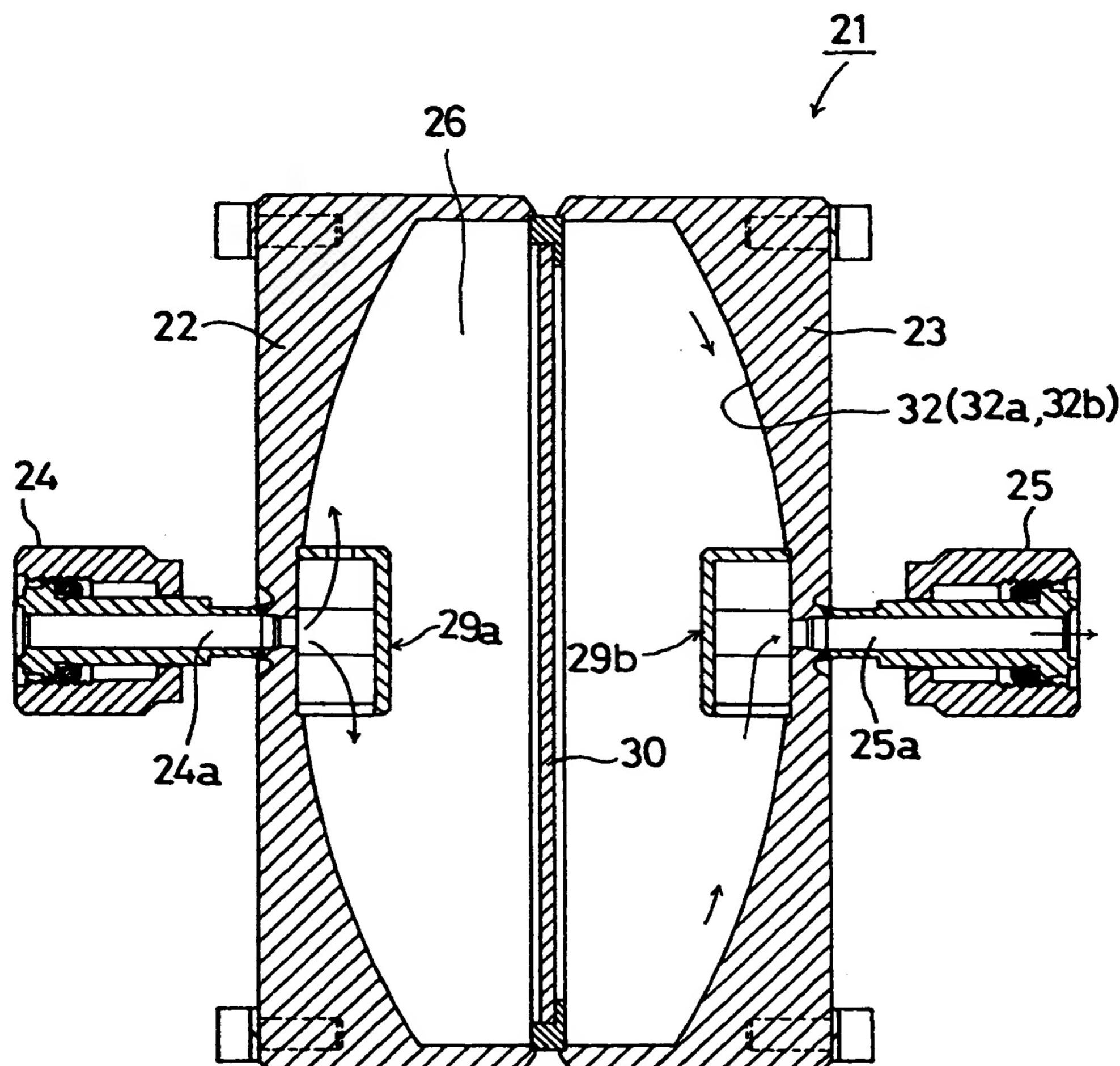
【図3】



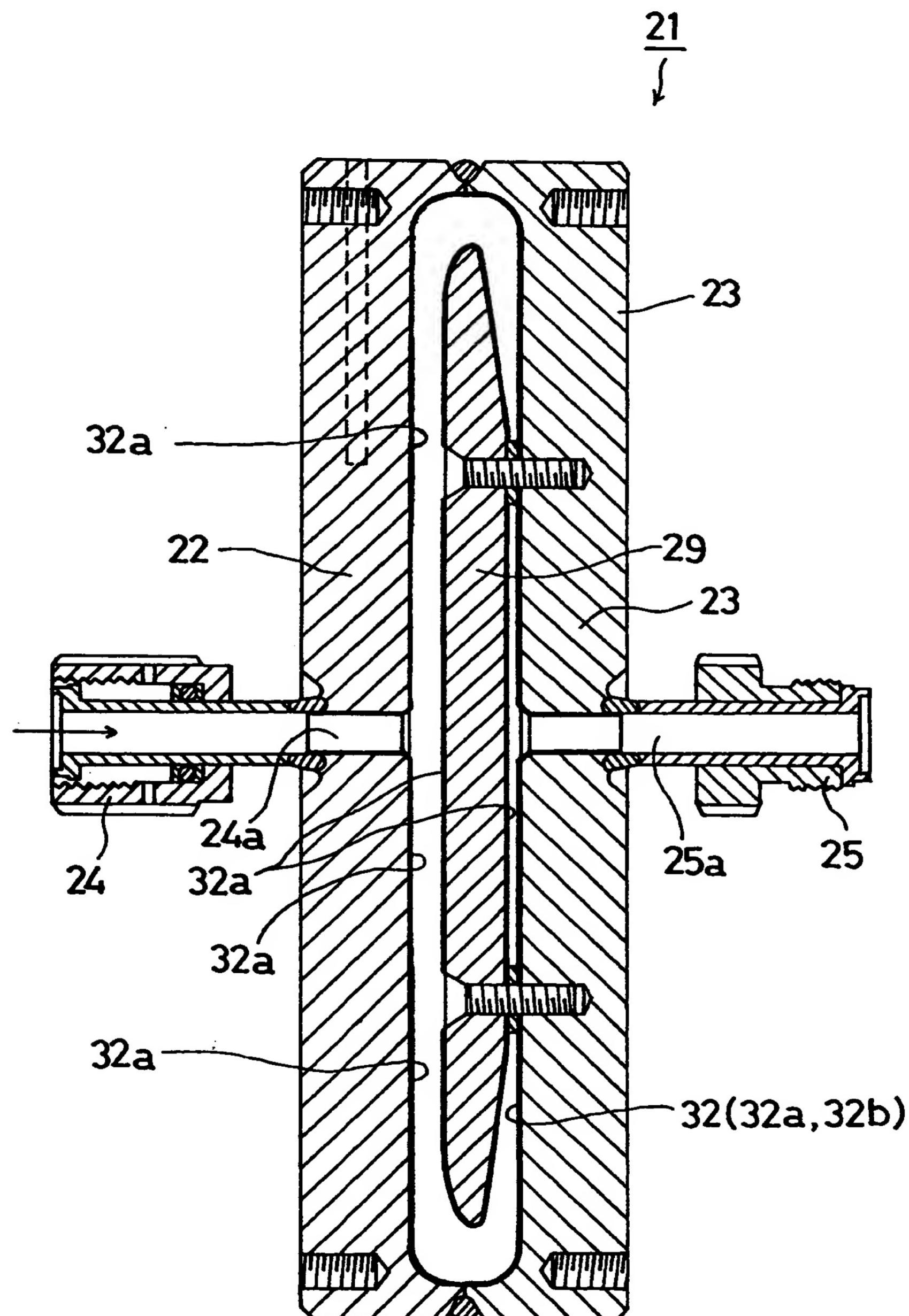
【図4】



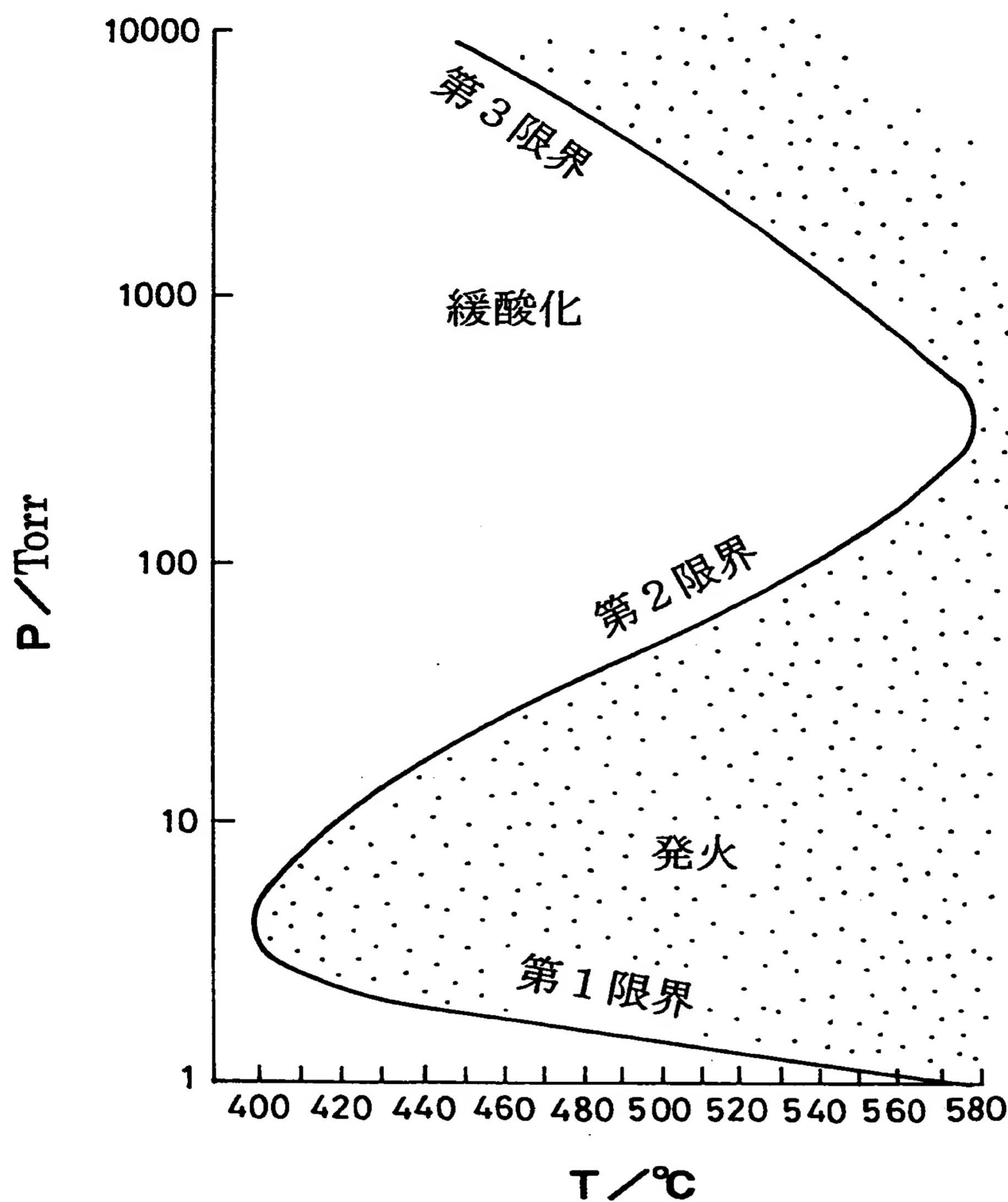
【図5】



【図6】



【図7】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 水分ガスの減圧供給（例えば数 Torr）を実現すると同時に、水分発生用反応炉の内圧を高く保持して水素の自然発火を防止できる安全な減圧型水分発生供給装置を開発する。

【解決手段】 本発明に係る減圧型水分発生供給装置は、水素と酸素から触媒反応により水分ガスを発生する水分発生用反応炉と、この水分発生用反応炉の下流側に設けられた減圧手段とから構成され、この減圧手段により水分ガスを減圧して下流側に供給すると同時に反応炉内の内圧を高く保持することを特徴としている。前記減圧手段としてはオリフィス、バルブ、その他公知の部材が利用できる。

【選択図】 図1

認定・付加情報

特許出願の番号	平成11年 特許願 第338882号	
受付番号	59901164128	
書類名	特許願	
担当官	内山 晴美	7545
作成日	平成11年12月 3日	

<認定情報・付加情報>

【特許出願人】

【識別番号】 390033857

【住所又は居所】 大阪府大阪市西区立売堀2丁目3番2号

【氏名又は名称】 株式会社フジキン

【代理人】

【識別番号】 100082474

【住所又は居所】 大阪府大阪市中央区北浜2丁目1番21号 北浜
カタノビル 岩越・杉本特許事務所

【氏名又は名称】 杉本 丈夫

【選任した代理人】

【識別番号】 100084342

【住所又は居所】 大阪府堺市百舌鳥梅北町3丁125番地の211
三木特許事務所

【氏名又は名称】 三木 久巳

次頁無

出願人履歴情報

識別番号 [390033857]

1. 変更年月日 1990年11月30日

[変更理由] 新規登録

住 所 大阪府大阪市西区立売堀2丁目3番2号

氏 名 株式会社フジキン